

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-094547

(43)Date of publication of application : 04.04.2000

---

(51)Int.Cl.

B32B 1/02  
B32B 27/34  
B32B 27/36  
B65D 1/09

---

(21)Application number : 10-267749

(71)Applicant : UNITIKA LTD

(22)Date of filing : 22.09.1998

(72)Inventor : YASUE KENJI

TAMURA TSUNEO

IDA TAKASHI

YOSHIKAWA MASATAKE

FUJIMOTO KOJI

KOKURYO SACHIKO

---

(54) MULTILAYER CONTAINER

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To sterilize at a high temperature under a high pressure and charge a content at a high temperature with excellent heat resistance and gas barrier properties, by forming it of a thermoplastic polyester layer containing an ethylene terephthalate unit as a main body and a polyamide layer reinforced by a silicate layer.

SOLUTION: The multilayer container comprises (A) a thermoplastic polyester layer containing an ethylene terephthalate unit as a main body, and (B) a polyamide layer reinforced by a silicate layer. An intrinsic viscosity of the polyester is preferably 0.5 to 1.5 of a value measured at 35°C by using a mixed refrigerant of phenol/tetrachloroethane=60/40 (by weight). The polyamide is obtained by using a monomer for forming the polyamide such as a lactam, an aminocarboxylic acid, a diamine and a dicarboxylic acid (including a pair of salts of them) or the like by melt polymerization (or melt polycondensation) or a solid state polymerization. An amount of the silicate layer is preferably 0.1 to 30 wt.%.

---

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

07.09.2005

**BEST AVAILABLE COPY**

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2000-94547  
(P2000-94547A)

(43) 公開日 平成12年4月4日(2000.4.4)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード(参考)
B 3 2 B 1/02		B 3 2 B 1/02	3 E 0 3 3
27/34		27/34	4 F 1 0 0
27/36		27/36	
B 6 5 D 1/09		B 6 5 D 1/00	B

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平10-267749

(22) 出願日 平成10年9月22日(1998.9.22)

(71) 出願人 000004503

ユニチカ株式会社  
兵庫県尼崎市東本町1丁目50番地

(72) 発明者 安江 健治

京都府宇治市宇治小桜23番地 ユニチカ株式会社中央研究所内

(72) 発明者 田村 恒雄

京都府宇治市宇治小桜23番地 ユニチカ株式会社中央研究所内

(72) 発明者 井田 孝

京都府宇治市宇治小桜23番地 ユニチカ株式会社中央研究所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 多層容器

(57) 【要約】

【課題】 耐熱性及びガスバリアー性に優れ、内容物の高温充填や加圧下での高温殺菌を可能にする多層容器を提供する。

【解決手段】 エチレンテレフタレート単位を主体とする熱可塑性ポリエステル層(A)と、珪酸塩層で補強されたポリアミド層(B)とからなる多層容器。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 エチレンテレフタレート単位を主体とする熱可塑性ポリエステル層(A)と、珪酸塩層で補強されたポリアミド層(B)とからなる多層容器。

【請求項2】 層(B)中における珪酸塩層の量が0.1～30重量%である請求項1記載の多層容器。

【請求項3】 多層容器中の層(B)の割合が1～99重量%である請求項1記載の多層容器。

【請求項4】 少なくとも一方向に延伸された請求項1記載の多層容器。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は多層容器に関する。さらに詳しくは、耐熱性及びガスバリアー性に優れ、内容物の高温充填や加圧下での高温殺菌を可能にする新規な多層容器に関する。

【0002】

【従来の技術】従来よりポリエチレンテレフタレート(PET)は、その優れた機械的特性や化学的特性によって、プラスチック容器素材として注目され、二軸延伸ブロー技術の進歩とも相まって、現在では各種飲料用のプラスチック容器の主要な素材となっている。

【0003】しかし、PETは、そのガラス転移温度が70℃付近にあり、必ずしも耐熱性は高いものではない。また、真空成形や延伸ブロー成形などの加工時に生じる大きな成形歪みを包含するため、内容物の高温充填や高温殺菌に際して変形が生じたりする点でも満足できるものではない。例えば、65℃以上の高温下で飲料を充填すると、容器の変形をきたすなどの不具合を生じる。現在では、ヒートセット技術や容器口栓部の結晶化技術の開発により、その耐熱性は85℃程度にまで向上しているが、ヒートセットや口栓部の結晶化処理には高温で長時間を要し、それに伴うコストアップが問題となっている。

【0004】また、上記した後処理によって耐熱性が改良された容器も、常圧下での高温充填にのみ有効であり、加圧下での高温充填や炭酸ガスを多く含む飲料の高温殺菌では容器の変形を引き起こし、そのような用途には使用できないという問題があった。

【0005】さらに、PETのガスバリアー性はポリオレフィンに比べると優れてはいるが、ポリ塩化ビニルやポリ塩化ビニリデンに比べると劣る。そのため、特に酸素や炭酸ガスのバリアー性が必要とされる飲料容器にはその使用が制限されていた。

【0006】他方、ポリ塩化ビニルやポリ塩化ビニリデンは耐熱性が不十分であることに加えて、ハロゲン原子を含むことによる、環境汚染の問題が指摘されており、プラスチック容器の素材としては適しているとはいえない。

【0007】このように十分な耐熱性と高度のガスバ

リアー性とを併せもち、プラスチック容器に使用可能な素材は殆どないのが実状である。また、上記した容器の後処理の効果も必ずしも十分ではない。そこで従来より、PET層と耐熱性あるいはガスバリアー性を有する異種の素材とからなる層とからなる多層容器が提案されている。

【0008】例えば、特開昭59-204552号公報には、PET層と耐熱性に優れたポリアリレート樹脂組成物の層とからなる多層容器が提案されている。また、プラスチックエージ、1986年、11巻、191頁には、PET層とガスバリアー性に優れたポリメタキシリレンアジパミド層とからなる多層容器が提案されている。しかし、これらの多層容器は、耐熱性とガスバリアー性とを同時に満足するものではなかった。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記問題点を解消するものであり、耐熱性及びガスバリアー性に優れ、内容物の高温充填や加圧下での高温殺菌を可能にする新規な多層容器を提供することを目的とする。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意研究を重ねた結果、多層容器の少なくとも一層に特定の強化材で補強されたポリアミド層を用いると、耐熱性及びガスバリアー性を同時に向上させることができることを見出し、本発明に到達した。

【0011】すなわち、本発明の要旨は次の通りである。

(1) エチレンテレフタレート単位を主体とする熱可塑性ポリエステル層(A)と、珪酸塩層で補強されたポリアミド層(B)とからなる多層容器。

(2) 層(B)中における珪酸塩層の量が0.1～30重量%である上記(1)記載の多層容器。

(3) 多層容器中の層(B)の割合が1～99重量%である上記(1)記載の多層容器。

(4) 少なくとも一方向に延伸された上記(1)記載の多層容器。

【0012】以下、本発明について詳細に説明する。

【0013】本発明の層(A)に用いられるエチレンテレフタレート単位を主体とする熱可塑性ポリエステルとは、主たる繰返し単位がエチレンテレフタレートからなり、全酸成分の20モル%以下の割合でフタル酸、イソフタル酸、ヘキサヒドロフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、アジピン酸、セバシン酸などのジカルボン酸成分やトリメリット酸、ピロメリット酸などの多価カルボン酸成分、あるいは全アルコール成分の20モル%以下の割合で1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、ネオペンチルグリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、シクロヘキサジメタノールなどのグリコール成分やトリメチロールプロパン、トリエチロールプロ

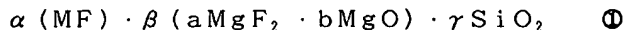
バン、ペンタエリスリトールなどの多価アルコール成分、あるいは酸成分とアルコール成分とを併せた全成分の20モル%以下の割合でp-オキシ安息香酸、乳酸などのオキシ酸成分を含有するものである。このような熱可塑性ポリエステルは、常法による熔融重縮合あるいは固相重縮合を併用して製造される。

【0014】上記熱可塑性ポリエステルの固有粘度は、特に制限されるものではないが、容器の成形及び性能を考慮すると、フェノール/テトラクロロエタン=60/40(重量比)の混合溶媒を用い、温度25℃で測定した値が0.5~1.5の範囲にあることが好ましい。

【0015】本発明の層(B)に用いられるポリアミドは、ラクタム、アミノカルボン酸、あるいはジアミンとジカルボン酸(それらの一対の塩も含まれる)などのポリアミドを形成するモノマーを、常法による熔融重縮合(もしくは熔融重縮合)あるいは固相重縮合を併用して製造されるものである。

【0016】このようなポリアミドを形成するモノマーの具体例としては、ラクタムとしてはε-カプロラクタム、ω-ウンデシルラクタム、ω-ラウロラクタムなどがある。また、アミノカルボン酸としては6-アミノカプロン酸、11-アミノウンデカン酸、12-アミノドデカン酸、p-アミノメチル安息香酸などがある。さらに、ジアミンとしてはテトラメチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、ノナメチレンジアミン、ウンデカメチレンジアミン、ドデカメチレンジアミン、2,2,4,2,4,4-トリメチルヘキサメチレンジアミン、5-メチルノナメチレンジアミン、2,4-ジメチルオクタメチレンジアミン、メタキシリレンジアミン、パラキシリレンジアミン、1,3-ビス(アミノメチル)シクロヘキサン、1-アミノ-3-アミノメチル-3,5,5-トリメチルシクロヘキサン、3,8-ビス(アミノメチル)トリシクロデカン、ビス(4-アミノシクロヘキシル)メタン、ビス(3-メチル-4-アミノシクロヘキシル)メタン、2,2-ビス(4-アミノシクロヘキシル)プロパン、ビス(アミノプロピル)ピペラジン、アミノエチルピペラジンなどがある。ジカルボン酸としてはアジピン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、2-クロロテレフタル酸、2-メチルテレフタル酸、5-メチルイソフタル酸、5-ナフタリウムスルホイソフタル酸、ヘキサヒドロテレフタル酸、ヘキサヒドロイソフタル酸、ジグリコール酸などがある。

【0017】本発明に用いるポリアミドの具体例としては、ポリカプロアミド(ナイロン6)、ポリウンデカミ



(式中、Mはナトリウムまたはリチウムを表し、α、β、γ、a及びbは各々計数を表し、 $0.1 \leq a \leq 2$ 、 $2 \leq \beta \leq 3.5$ 、 $3 \leq \gamma \leq 4$ 、 $0 \leq a \leq 1$ 、 $0 \leq b \leq 1$ 、 $a + b = 1$ である)。

ド(ナイロン11)、ポリドデカミド(ナイロン12)、ポリテトラメチレンアジバミド(ナイロン46)、ポリヘキサメチレンアジバミド(ナイロン66)、ポリヘキサメチレンセバカミド(ナイロン610)、ポリヘキサメチレンドデカミド(ナイロン612)、ポリウンデカメチレンアジバミド(ナイロン116)、ポリトリメチルヘキサメチレンアジバミド(ナイロンTMHT/6)、ポリヘキサメチレンテレフタルアミド(ナイロン6T)、ポリヘキサメチレンイソフタルアミド(ナイロン6I)、ポリノナメチレンテレフタルアミド(ナイロン9T)、ポリ〔ビス(4-アミノシクロヘキシル)メタンドデカミド〕(ナイロンPACM12)、ポリ〔ビス(3-メチル-4-アミノシクロヘキシル)メタンドデカミド〕(ナイロンDMPACM12)、ポリメタキシリレンアジバミド(ナイロンMDX6)、ポリウンデカメチレンテレフタルアミド(ナイロン11T)、ポリウンデカメチレンヘキサヒドロテレフタルアミド、及びこれらの共重合体あるいはこれらの混合体などが挙げられる。これらの中では、ナイロン6、ナイロン66、ナイロン11、ナイロン12及びこれらの共重合体あるいは混合体が好ましく、ナイロン6及びこの共重合体がコストと性能のバランスがとれている点で特に好ましい。

【0018】上記ポリアミドの相対粘度は、特に制限されるものではないが、容器の成形及び性能を考慮すると、溶媒として96%濃硫酸溶媒を用い、温度25℃、濃度1g/dlの条件で測定した値が1.5~6.0の範囲にあることが好ましい。

【0019】本発明の層(B)に用いられる珪酸塩層は、層状珪酸塩を構成する基本単位であって、膨潤性層状珪酸塩を劈開処理することによって得られるものであり、ポリアミド中において一辺の長さが0.002~1μm、厚みが6~20Åの大きさを有するものである。このような膨潤性層状珪酸塩は、天然のものであっても合成されたものであってもよく、その具体例としては、モンモリロナイト、バイデライト、サボナイト、ヘクトライト、ソーコナイトなどのスメクタイト系鉱物、バーミキュライトなどのバーミキュライト系鉱物、白雲母、黒雲母、パラゴナイト、レピトライト、膨潤性フッ素雲母などの雲母系鉱物、マーガライト、クリントナイト、アナンダイトなどの脆雲母系鉱物、ドンバサイト、スドーアイト、クッケアイト、クリノクロア、シャモサイト、ニマイトなどの緑泥石系鉱物、セピオライトなどの含水イノケイ酸塩系鉱物などが挙げられるが、これらの中では、下記式①で示される膨潤性フッ素雲母系鉱物(雲母の水酸基をフッ素で置換したもの、合成品)が、ポリアミド樹脂中における分散性と白色度の点で特に好ましい。

【0020】このような膨潤性フッ素雲母の製造法としては、例えば、酸化珪素と酸化マグネシウムと各種フッ化物とを混合し、その混合物を電気炉あるいはガス炉中で1400~1500℃の温度範囲で完全に熔融し、その冷却過

程で反応容器内にフッ素雲母を結晶成長させる、いわゆる溶融法がある。また、タルクを出発物質として用い、これにアルカリ金属イオンをインターカレーションしてフッ素雲母を得る方法がある（特開平2-149415号公報）。この方法では、タルクに珪フッ化物アルカリあるいはフッ化アルカリを混合し、磁製ルツボ内で700～1200℃で短時間加熱処理することによって膨潤性フッ素雲母を得ることができる。

【0021】本発明における珪酸塩層で補強されたポリアミド(B)を得る方法としては、例えば、特開平6-248176号公報に記載された方法に基づいて、膨潤性層状珪酸塩とポリアミドを形成するモノマーとを重合により得る方法がある。また、特開昭63-221125号公報に基づいて、まず膨潤性層状珪酸塩を予め有機処理して複合体を得、次いでこの複合体とポリアミドを形成するモノマーとを重合により得る方法がある。

【0022】このような方法を用いると、珪酸塩層がポリアミド中に分子レベルで分散され、補強効果に優れたものが得られる。なお、分子レベルでの分散状態については、具体的には、広角X線測定を行うことにより確認できる。すなわち、原料の状態では、層状珪酸塩のc軸方向の層間距離（通常湿熱下において8～20Å）に由来する回折が観測されるが、珪酸塩層がポリアミド樹脂中に分子レベルで分散した状態では、層状珪酸塩の各層が剥離し、ランダムな方向をとり、結果として、層状珪酸塩の結晶構造に由来するピークが観測されなくなることによって確認できる。また、電子顕微鏡写真観察により、ポリアミド中の珪酸塩層のおおよその大きさを見ることにより確認することもできる。

【0023】本発明の層(B)中における珪酸塩層の量は、0.1～30重量%であることが好ましく、0.2～15重量%であることがより好ましい。この量が0.1重量%未満では、耐熱性及びガスバリア性を同時に満足する多層容器を得ることが難しく、一方、この量が30重量%を超えると、多層容器を成形することが難しくなる。

【0024】次に、本発明の多層容器について説明する。本発明の多層容器においては、その層数や層配置などの層構成には特に制限はなく、少なくとも層(A)と層(B)とをそれぞれ一層以上含めばよく、層構成は容器の用途に応じて適宜選定することができる。また、層(A)と層(B)との重量比も用途に応じて適宜選択できるが、本発明の効果を十分に発現するためには、多層容器中の層(B)の割合が1～99重量%の範囲にすることが好ましく、5～80重量%の範囲にすることがより好ましい。さらに、必要に応じて接着剤層やその他の機能層を介在させることも可能である。

【0025】本発明の多層容器は、例えば、上記構成をもつ共押し出し多層シートを加熱後、真空成形又は圧縮成形などの深絞り加工することによって得ることができる。また、共押し出しによるダイレクトブロー成形で得

ることもできる。また、共射出成形により多層プレフォームを得た後、これを二軸延伸することによっても得ることができる。さらに、共押し出し多層パイプを定長に切断した後、その両端を加熱し、圧縮成形によって口部形成および底部の融着を行って得られた多層プレフォームを得、これを二軸延伸して得ることもできる。

【0026】上記の方法によって得られた多層容器は、未延伸のまま用いてもよいし、一軸方向あるいは多軸方向に延伸して用いることもできる。延伸の有無およびその条件などは用途に応じて適宜選定することができる。

【0027】

【実施例】次に、本発明を参考例及び実施例により、さらに具体的に説明する。

〔測定方法〕

(a) ポリアミドの相対粘度

ポリアミドを1g/dlの濃度となるよう96%濃硫酸に溶解し、ウベローデ型粘度計を用いて温度25℃にて流下時間の測定を行った。試料溶液流下時間を溶媒流下時間で割った値を試料の相対粘度とした。なお、ポリアミドの試料溶液濃度を1g/dlに調整する際には、あらかじめ含まれる珪酸塩層の濃度を考慮して、珪酸塩層を除いたポリアミドの濃度が1g/dlとなるようにした。

(b) PETの固有粘度

フェノール/テトラクロロエタン=60/40（重量比）の混合溶媒を用い、ウベローデ型粘度計を用いて温度25℃で測定した。

(c) ポリアミド中の珪酸塩層の分散性(1)

珪酸塩シートで補強されたポリアミドのペレットについて、広角X線回折装置（リガク社製、RAD-rB型）を用いて測定を行い、ポリアミド中の珪酸塩層の分散性を評価した。原料の膨潤性フッ素雲母系鉱物に認められた層状構造に由来するc軸方向のピークが認められない場合、ポリアミドマトリクス中に珪酸塩層が分子レベルで分散されていると見なした。

(d) ポリアミド中の珪酸塩層の分散性(2)

珪酸塩層で補強されたポリアミドのペレットを小さく切り出し、これをエポキシ樹脂に包埋し、ダイヤモンドナイフにて超薄切片に切り出した。この超薄切片について、透過型電子顕微鏡（日本電子製、JEM-200CX型、加速電圧100kV）を用いて電子顕微鏡写真観察を行い、ポリアミド中の珪酸塩層の分散性を評価した。

(e) ポリアミド中の珪酸塩層の含有量

珪酸塩層で補強されたポリアミドのペレットを磁製ルツボに精秤し、500℃に保持した電気炉で15時間焼却処理（灰化処理）した後の灰分量を測定することにより求めた。

珪酸塩層の含有量（重量%）＝〔（灰分重量）／（試料の重量）〕×100

(f) 酸素もしくは炭酸ガス透過係数

モダンコントロール社製のガス透過率測定装置 MOCONOX

-TRAN-100Aを用いて、ASTM D-3985-81に準じて、各種の厚みのシートの酸素もしくは炭酸ガス透過量を測定した。測定は、23℃、100%RH、1気圧の条件下で行い、酸素もしくは炭酸ガス透過係数は次式より求めた。

酸素透過係数 ( $\text{ml} \cdot \text{mm} / \text{m}^2 \cdot 24\text{hrs} \cdot \text{atm}$ ) = 酸素透過量 ( $\text{ml} / \text{m}^2 \cdot 24\text{hrs} \cdot \text{atm}$ )  $\times$  厚み (mm)

炭酸ガス透過係数 ( $\text{ml} \cdot \text{mm} / \text{m}^2 \cdot 24\text{hrs} \cdot \text{atm}$ ) = 炭酸ガス透過量 ( $\text{ml} / \text{m}^2 \cdot 24\text{hrs} \cdot \text{atm}$ )  $\times$  厚み (mm)

なお、この値はガスバリアー性の指標となるもので、小さいものほどガスバリアー性が良好である。

【0028】〔参考例1〕珪酸塩層で補強されたポリアミド (P-1) の調製

$\epsilon$ -カプロラクタム10kg、水1kg及び膨潤性フッ素雲母系鉱物 (コープケミカル社製、ソマシフ「ME-100」、広角X線で測定したシリケート層の層間距離は9.6Å及び12.5Å) 200gを混合し、これを内容量30リットルの反応缶に入れ、次の方法で珪酸塩層で補強されたポリアミド (P-1) を調製した。すなわち、反応缶の内容物を攪拌しながら260℃に加熱し、徐々に水蒸気を放出しつつ、4kg/cm<sup>2</sup>から15kg/cm<sup>2</sup>の圧力まで昇圧した。その後、圧力15kg/cm<sup>2</sup>、温度260℃に保って1時間制圧した後、1時間かけて徐々に水蒸気を放出しつつ、常圧まで放圧し、その後260℃で1時間重合した。重合の終了した時点で反応生成物を反応缶から払い出し、冷却した後、これを切断してペレットとした。次いで、得られたペレットを95℃の熱水で精練処理を3時間行い、乾燥して珪酸塩層で補強されたポリアミドを得た。このポリアミド (P-1) の相対粘度は2.8であった。また、このポリアミド (P-1) のペレットについて広角X線回折測定を行ったところ、原料の膨潤性フッ素雲母系鉱物に認められた層状構造に由来するピークは認められず、珪酸塩の層状構造は劈開し、ポリアミドマトリクス中に分子レベルで分散されていることがわかった。さらに、このポリアミド (P-1) のペレットについて透過型電子顕微鏡写真観察を行ったところ、珪酸塩層がばらばらになってポリアミドマトリクス中に分子レベルで分散されているのが確認された。なお、灰分測定によるポリアミド (P-1) 中の珪酸塩シートの含有量は2.1重量%であった。

表1 容器 (カップ) のガスバリアー性

	実施例1	比較例1
酸素透過係数	1.1	2.0
炭酸ガス透過係数	4.2	8.0

(注) 単位:  $\text{ml} \cdot \text{mm} / \text{m}^2 \cdot 24\text{hrs} \cdot \text{atm}$

【0031】実施例2及び比較例2

固有粘度1.0のPET及び参考例2の珪酸塩層で補強されたポリアミド (P-2) を用い、これらの材料を加熱真空乾燥により十分に乾燥した上で、多層射出成形機を用いて280℃の温度で成形し、長さ131mm、外径25mm、平均厚み4mmのプリフォームを成形した。この多層プリフォームは、層厚み構成がPET/P-2/PET=

【0029】〔参考例2〕珪酸塩層で補強されたポリアミド (P-2) の調製

$\epsilon$ -カプロラクタム8kg、12-アミノドデカン酸2kg、水1kg及び膨潤性フッ素雲母系鉱物 (コープケミカル社製、ソマシフ「ME-100」) 300gを用いた他は、参考例1と同様にして珪酸塩シートで補強されたポリアミド (P-2) を調製した。このポリアミド (P-2) の相対粘度は3.0であった。また、このポリアミド (P-2) のペレットについて広角X線回折測定を行ったところ、原料の膨潤性フッ素雲母系鉱物に認められた層状構造に由来するピークは認められず、珪酸塩の層状構造は劈開し、ポリアミドマトリクス中に分子レベルで分散されていることがわかった。さらに、このポリアミド (P-2) のペレットについて透過型電子顕微鏡写真観察を行ったところ、珪酸塩層がばらばらになってポリアミドマトリクス中に分子レベルで分散されているのが確認された。なお、灰分測定によるポリアミド (P-2) 中の珪酸塩層の含有量は2.8重量%であった。

【0030】実施例1及び比較例1

固有粘度1.0のPET及び参考例1の珪酸塩層で補強されたポリアミド (P-1) を用い、これらの材料を加熱真空乾燥により十分に乾燥した上で、多層ダイを備えた押し出し機を用いて、270℃で押し出し、層厚み構成がPET/P-1/PET=340/80/340 (単位:  $\mu\text{m}$ ) の三層構造で幅800mmのシートを得た。このシート中でのP-1の割合は9重量%であった。次に、このシートを150℃で5秒間加熱した後、真空成形によって直径100mm厚み270 $\mu\text{m}$ 、深さ40mmのカップを成形した。このカップは均一に延伸されたものであった。なお、比較のためPETの単層シート (厚み760 $\mu\text{m}$ ) を用いて同様なカップを成形した (比較例1)。これら2種類のカップに95℃の熱湯を注いだところ、PET単独からなるカップは大きく変形収縮したのに対し、本発明のカップには何らの変形も認められなかった。また、カップから切り出したシート (厚み270 $\mu\text{m}$ ) を用いて、モコン法で酸素及び炭酸ガス透過係数を測定したところ、表1に示すようにPET単独の容器の場合に比べて本発明の容器ではガスバリアー性が大きく向上していた。

1.75/0.5/1.75 (単位: mm) の三層構造のものであった。このプリフォーム中のP-2の割合は15重量%であった。次に、このプリフォームを二軸延伸ブロー機に移し、表面温度が100℃になるまで加熱し、二軸延伸ブロー成形を行い、二軸延伸ボトルを得た。このボトルの寸法は高さ308mm、外径91.5mm、厚み370 $\mu\text{m}$ 、内容積は1.5リットルであった。また、比較のためPETの単層

プリフォーム（厚み 4.0mm）を用いて同様な二軸延伸ボトルを成形した（比較例2）。これら2種類のボトルに95℃の熱湯を注いだところ、PET単独からなるボトルは大きく変形収縮したのに対し、本発明のボトルには何らの変形も認められなかった。またボトルから切り出し

たシート（厚み 370 $\mu$ m）を用いて、モコン法で酸素及び炭酸ガス透過係数を測定したところ、表2に示すようにPET単独の容器の場合に比べて本発明の容器ではガスバリアー性が大きく向上していた。

表2 容器（ボトル）のガスバリアー性

	実施例1	比較例1
酸素透過係数	1.2	2.3
炭酸ガス透過係数	4.8	9.2

（注）単位：ml・mm/m<sup>2</sup>・24hrs・atm

【0032】

【発明の効果】本発明によれば、耐熱性及びガスバリア

一性に優れ、内容物の高温充填や加圧下での高温殺菌を可能にする多層容器が得られる。

フロントページの続き

(72)発明者 吉川 昌毅  
京都府宇治市宇治小桜23番地 ユニチカ株  
式会社中央研究所内  
(72)発明者 藤本 康治  
京都府宇治市宇治小桜23番地 ユニチカ株  
式会社中央研究所内

(72)発明者 國領 佐知子  
京都府宇治市宇治小桜23番地 ユニチカ株  
式会社中央研究所内  
Fターム(参考) 3E033 BA18 BA21 BB01 BB08 CA07  
CA16 FA03 GA02  
4F100 AA03B AA03H AC05B AC05H  
AK42A AK42C AK46B AK48B  
BA03 BA06 BA15 DA01 EH20  
GB16 JB16A JB16C JC00  
JD02 JJ03 YY00B

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER: \_\_\_\_\_**

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**